

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-260855

(43)Date of publication of application : 13.09.2002

(51)Int.Cl. H05B 33/10
H05B 33/12
H05B 33/14
H05B 33/22

(21)Application number : 2001-058835

(71)Applicant : FUJI PHOTO FILM CO LTD

(22)Date of filing : 02.03.2001

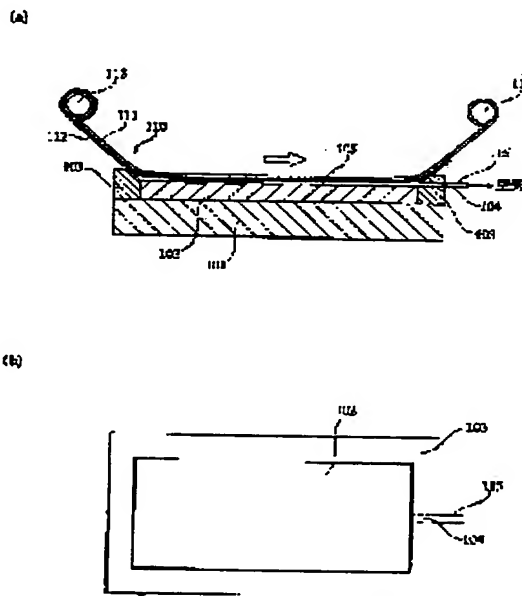
(72)Inventor : ARAKI YASUSHI
SHIBATA TAKESHI

(54) MANUFACTURING METHOD OF ORGANIC FILM ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an efficient manufacturing method of an organic EL element or the like that is superior in luminous efficiency, uniformity of emission amount and durability by forming a uniform organic film layer by wet process.

SOLUTION: A transfer material 110 is made by forming an organic film layer 112 on a temporary support body 111 by wet process, and the organic film layer 112 side of the transfer material 110 is put opposed to the film formed face of a transparent conductive layer 102 on the substrate support body 101, and, by decompressing the closed space interposed between the transfer material 110 and the film formed face, both are adhered closely and heated, and by separating the temporary support body 111, the organic film layer 112 is transferred to the transparent conductive layer 102.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 30.01.2006

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2002-260855
(P2002-260855A)

(43)公開日 平成14年9月13日(2002.9.13)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームコード(参考)
H 0 5 B 33/10		H 0 5 B 33/10	3 K 0 0 7
33/12		33/12	B
33/14		33/14	A
33/22		33/22	D
			B
審査請求 未請求 請求項の数13 O L (全 13 頁)			

(21)出願番号 特願2001-58835(P2001-58835)

(22)出願日 平成13年3月2日(2001.3.2)

(71)出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社
神奈川県南足柄市中沼210番地

(72)発明者 荒木 康

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フイルム株式会社内

(72)発明者 柴田 剛

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フイルム株式会社内

(74)代理人 100080012

弁理士 高石 橋馬

Fターム(参考) 3K007 AB03 AB04 AB18 CA01 CB01
DA01 DB03 EB00 FA01

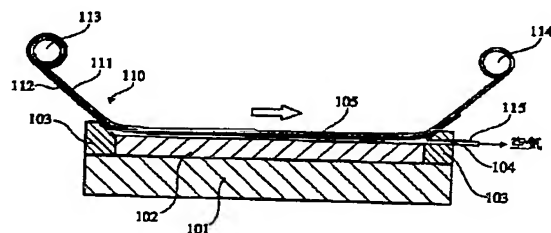
(54)【発明の名称】 有機薄膜素子の製造方法

(57)【要約】

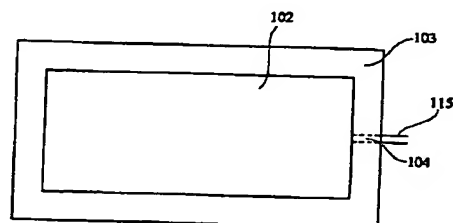
【課題】 湿式法を用いて均一な有機薄膜層を形成することにより、発光効率、発光量の均一性及び耐久性に優れた有機EL素子等の有機薄膜素子を効率良く製造する方法を提供する。

【解決手段】 仮支持体111上に湿式法により有機薄膜層112を形成することにより転写材料110を作製し、転写材料110の有機薄膜層112側を基板支持体101上の透明導電層102の被成膜面に対面させ、転写材料110と被成膜面とに挟まれた閉空間を減圧にすることにより両者を密着させ、加熱し、仮支持体111を引き剥がすことにより、有機薄膜層112を透明導電層102に転写する有機薄膜素子の製造方法。

(a)



(b)



【特許請求の範囲】

【請求項1】 仮支持体上に湿式法により有機薄膜層を形成することにより転写材料を作製し、前記転写材料の前記有機薄膜層側を基板の被成膜面に対面させ、前記転写材料と前記被成膜面とに挟まれた空間を減圧にすることにより両者を密着させ、加熱し、前記仮支持体を引き剥がすことにより前記有機薄膜層を前記基板の被成膜面に転写することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項2】 請求項1に記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記転写材料と前記被成膜面との間に微細パターン状の開口部を有するマスクを介在させ、前記転写材料と前記被成膜面とに挟まれたマスク開口部の空間を減圧して、前記転写材料の前記有機薄膜層と前記被成膜面とを密着させ、加熱し、前記仮支持体を引き剥がすことにより前記マスク開口部の微細パターン状に前記有機薄膜層を基板に転写することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項3】 請求項2に記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記マスク開口部は基板側から転写材料側に拡開するテーパー状であることを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項4】 請求項2又は3に記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記マスクは各開口部に連通する減圧孔を有し、減圧孔を介して前記空間内を減圧することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項5】 請求項4に記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記減圧孔は前記マスクの底面に設けられた溝を有することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項6】 請求項2～5のいずれかに記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記マスクは金属、ガラス、セラミック及び耐熱性樹脂のいずれかからなることを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項7】 仮支持体上に湿式法により有機薄膜層を形成することにより転写材料を作製し、前記転写材料の前記有機薄膜層側を前記基板の被成膜面に対面させて密着させ、加熱し、前記仮支持体を引き剥がすことにより前記有機薄膜層を前記基板に転写する剥離転写法により有機薄膜素子を製造する方法であって、連続面状の有機薄膜層及び微細パターン状の有機薄膜層の任意の組合せからなる積層体を前記剥離転写法を繰り返すことにより前記基板上に形成することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項8】 仮支持体上に湿式法により有機薄膜層を形成することにより転写材料を作製し、前記転写材料の前記有機薄膜層側を基板の被成膜面に対面させ、前記転写材料と前記被成膜面とに挟まれた空間を減圧にすることにより両者を密着させ、加熱し、前記仮支持体を引き剥がして、前記有機薄膜層を前記基板に転写する剥離転写法により有機薄膜素子を製造する方法であって、連続

面状の有機薄膜層及び微細パターン状の有機薄膜層の任意の組合せからなる積層体を前記剥離転写法を繰り返すことにより前記基板上に形成することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項9】 請求項2～8のいずれかに記載の有機薄膜素子の製造方法において、青、緑及び赤の発光画素が繰り返し隣接して形成されるように、それぞれ青、緑及び赤の有機薄膜層を微細パターン状に繰り返し剥離転写することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項10】 請求項1～9のいずれかに記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記有機薄膜層は少なくとも発光性有機化合物又はキャリア輸送性有機化合物を含むことを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項11】 請求項1～10のいずれかに記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記有機薄膜層は基板側から順にホール輸送性有機薄膜層、発光性有機薄膜層及び電子輸送性有機薄膜層を有することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項12】 請求項11に記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記発光性有機薄膜層は青、緑及び赤の発光画素を繰り返し隣接して有することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項13】 請求項1～12のいずれかに記載の有機薄膜素子の製造方法において、前記基板は基板支持体とその上に形成された透明導電層からなることを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は有機薄膜素子の製造方法に関し、特に有機EL素子の有機薄膜層の形成あるいは微細パターニングした有機薄膜層の形成に利用できる方法に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 有機EL素子等の有機発光素子は容易に面状発光素子に適用し得るため、新たな光デバイスとして注目されている。具体的には、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子や書きこみ光源アレイとしての用途が有望視され、多くの開発が行なわれている。一般に有機発光素子は、発光層及び前記発光層を挟んだ一対の対向電極（背面電極及び透明電極）から構成されている。前記有機発光素子において、一対の対向電極間に電界が印加されると、有機発光素子内に背面電極から電子が注入されるとともに、透明電極から正孔が注入される。電子と正孔とが前記発光層中で再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーが光として放出され、発光する。

【0003】 有機EL素子の有機薄膜形成の多くは蒸着方式により製造されている。カラー画像を得るためのパターニング方式も提案されている。たとえば、米国特許第

5294869号に示されるシャドウマスクを用いた方法がある。ところが、この方法は複雑な蒸着装置を必要とするため製造効率が悪く、またパターンニングの位置精度も悪い。

【0004】この点を解決する手段として、特開平9-167684号は、マイカ仮基板上に予め有機層を均一に蒸着プロセスで形成し、次いで基板と有機層を近接させ、パターン上に選択的に加熱蒸着する方式を提案している。また特開2000-195665号は、フィルム仮基板に予め有機層を均一に蒸着プロセスで形成し、次いでマスクを介して基板と有機層を近接させ、マスクのパターン状に蒸着パターンを形成する方式を提案している。これらの方式は、蒸着源を仮基板に形成すること以外は、蒸着プロセスを用いる必要があるため、製造効率が悪く、また有機薄膜用に低分子有機化合物しか使用できない。

【0005】また緑色の発光を示すポリパラフェニレンビニレン（「ネイチャー」、347巻、539頁、1990年）、赤橙色の発光を示すポリ（3-アルキルチオフェン）（ジャパニーズ・ジャーナル・オブ・アプライド・フィジクス、30巻、L1938頁、1991年）、青色発光素子としてポリアルキルフルオレン（ジャパニーズ・ジャーナル・オブ・アプライド・フィジクス、30巻、L1941頁、1991年）等の高分子の発光薄膜や低分子化合物をバインダー樹脂に分散させた発光薄膜を用いた高分子型素子も知られている。これらの高分子型素子は大面積化に有利であり、またフレキシブルなディスプレイ用途として期待されているが、有機発光薄膜の形成に蒸着プロセスを適応できない。そのため、通常湿式法により薄膜形成が行われている。

【0006】高分子型素子の薄膜パターンニング形成方法として、インクジェット法や印刷法等が提案されている。ところが、これらの方式では、湿式法のため溶液の表面張力により有機薄膜の膜厚均一性が不十分であり、また有機薄膜層を積層する場合に各有機薄膜層の界面で溶解してしまうという問題がある。このため、この方法により得られた有機薄膜素子は発光効率や素子耐久性に劣るという問題があった。

【0007】WO 00/41893号は、有機薄膜と光熱変換層を有するドナーシートを用いて、レーザにより所望のパターンに熱転写する方式を提案している。ところがWO 00/41893号のような熱転写法の場合、有機薄膜層の接合界面に気体の巻き込みの問題がある。有機薄膜層の界面の状態により、有機EL素子の発光効率や耐久性、更に発光面状の均一性が異なり、有機薄膜層の接合界面に気体の巻き込みがあると、素子性能は悪化する。

【0008】またプリント技術分野で利用されている熱ヘッドやレーザを用いたパターン状の熱書き込みの場合、熱拡散性によりパターンの周辺に温度分布が生じて、有機薄膜パターンの輪郭がきれいにドナー側から切断されない。このため発光量のばらつきが生じたり、ま

た電氣的不良や薄膜破片による欠陥が起こり、更に耐久性も悪くなるという問題がある。また基板と熱ヘッドやレーザとの位置合わせの不良により、歩留まり低下の問題もある。

【0009】従って本発明の目的は、有機薄膜層を簡便な製造装置で安価に基板上に形成できるとともに、均一性及び良好な接合界面を有する有機薄膜素子を製造する方法を提供することであり、特に湿式法を用いて均一な有機薄膜層を形成することにより、発光効率、発光量の均一性及び耐久性に優れた有機EL素子等の有機薄膜素子を効率良く製造する方法を提供することである。

【0010】

【課題を解決するための手段】上記目的に鑑み鋭意研究の結果、本発明者等は、有機薄膜素子を構成する有機薄膜層を仮支持体に湿式法により塗布し、その有機薄膜層を基板に転写することにより、発光効率、発光量の均一性及び耐久性に優れた有機EL素子等の有機薄膜素子を低コストで製造できることを発見し、本発明に想到した。

【0011】すなわち、本発明の一実施例による有機薄膜素子の製造方法は、仮支持体上に湿式法により有機薄膜層を形成することにより転写材料を作製し、前記転写材料の前記有機薄膜層側を基板の被成膜面に対面させ、前記転写材料と前記被成膜面とに挟まれた空間を減圧にすることにより両者を密着させ、加熱し、前記仮支持体を引き剥がすことにより前記有機薄膜層を前記基板の被成膜面に転写することを特徴とする。

【0012】本発明の別の実施例による有機薄膜素子の製造方法は、前記転写材料と前記被成膜面との間に微細パターン状の開口部を有するマスクを介在させ、前記転写材料と前記被成膜面とに挟まれたマスク開口部の空間を減圧して、前記転写材料の前記有機薄膜層と前記被成膜面とを密着させ、加熱し、前記仮支持体を引き剥がすことにより前記マスク開口部の微細パターン状に前記有機薄膜層を基板に転写することを特徴とする。

【0013】本発明のさらに別の実施例による有機薄膜素子の製造方法は、仮支持体上に湿式法により有機薄膜層を形成することにより転写材料を作製し、前記転写材料の前記有機薄膜層側を前記基板の被成膜面に対面させて密着させ、加熱し、前記仮支持体を引き剥がすことにより前記有機薄膜層を前記基板に転写する剥離転写法により有機薄膜素子を製造するもので、連続面状の有機薄膜層及び微細パターン状の有機薄膜層の任意の組合せからなる積層体を前記剥離転写法を繰り返すことにより前記基板上に形成することを特徴とする。

【0014】本発明のさらに別の実施例による有機薄膜素子の製造方法は、仮支持体上に湿式法により有機薄膜層を形成することにより転写材料を作製し、前記転写材料の前記有機薄膜層側を基板の被成膜面に対面させ、前記転写材料と前記被成膜面とに挟まれた空間を減圧にすることにより両者を密着させ、加熱し、前記仮支持体を

引き剥がして、前記有機薄膜層を前記基板に転写する剥離転写法により有機薄膜素子を製造するもので、連続面状の有機薄膜層及び微細パターン状の有機薄膜層の任意の組合せからなる積層体を前記剥離転写法を繰り返すことにより前記基板上に形成することを特徴とする。

【0015】青、緑及び赤の発光画素が繰り返し隣接して形成されるように、それぞれ青、緑及び赤の有機薄膜層を微細パターン状に繰り返し剥離転写するのが好ましい。

【0016】有機薄膜層は少なくとも発光性有機化合物又はキャリア輸送性有機化合物を含むのが好ましい。

【0017】前記有機薄膜層は基板側から順にホール輸送性有機薄膜層、発光性有機薄膜層及び電子輸送性有機薄膜層を有するのが好ましい。また発光性有機薄膜層は青、緑及び赤の発光画素を繰り返し隣接して有するのが好ましい。

【0018】前記マスク開口部は基板側から転写材料側に拡開するテーパー状であるのが好ましい。また前記マスクは各開口部に連通する減圧孔を有し、減圧孔を介して前記空間内を減圧するのが好ましい。さらに前記減圧孔は前記マスクの底面に設けられた溝を有するのが好ましい。前記マスクは金属、ガラス、セラミック及び耐熱性樹脂のいずれかからなるのが好ましい。

【0019】基板は基板支持体とその上に形成された透明導電層からなるのが好ましい。

【0020】

【発明の実施の形態】まず添付図面を参照して本発明の有機薄膜素子の製造方法を説明し、次いで有機薄膜素子を構成する材料を説明する。

【0021】(1) 有機薄膜素子の製造方法

(1) 第一の態様

図1～図3は本発明の第一の態様による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示す。この装置は、基板支持体101と、その上に設けられた透明導電層102と、透明導電層102を包囲するように基板支持体101上に設けられたマスク枠103とを有する。マスク枠103には透明導電層102と転写材料110との間の空間105に連通する減圧孔104が設けられており、減圧孔104はパイプ115により真空装置（図示せず）に接続している。

【0022】転写材料110は仮支持体111の片面に有機薄膜層112を形成してなる。ロール113に巻かれた転写材料110を巻き戻し、マスク枠103の上をそれに接するようにして移動させる。これにより、転写材料110とマスク枠103及び透明導電層102を有する基板支持体101とに挟まれた閉空間105ができる（図1）。転写材料110がマスク枠103に接した状態で真空装置を作動させると、閉空間105は減圧状態になるため、転写材料110は透明導電層102に密着し、図2に示す状態になる。この状態で、熱ヘッド等により転写材料110の有機薄膜層112を加熱すると、有機薄膜層112は透明導電層102に接着するので、仮支持体

111を引き剥がし、さらにマスク枠103を取り外すと、透明導電層102上に有機薄膜層112が連続面状に形成された有機薄膜素子が得られる（図3）。

【0023】(2) 第二の態様

図4は本発明の第二の態様による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示す。転写材料110の巻回ロール116を移動させる機構を有し、かつマスク枠103上をそれと接するようにして、ロール116と同期して移動し得る遮蔽板120を有する。基板支持体101上の透明導電層102及びマスク枠103と、遮蔽板120と、転写材料110とにより包囲された空間は、マスク枠103に設けられた減圧孔104に連通している。そのため第一の態様と同様に前記空間を減圧することにより、転写材料110の有機薄膜層112は透明導電層102に密着し、後は上記と同じ方法で加熱し、仮支持体111を剥離することにより、透明導電層102上に有機薄膜層112が連続面状に形成された積層体が得られる。

【0024】この方法では、転写材料110が小面積で透明導電層102と接触するので、転写材料110の有機薄膜層112と透明導電層102との間に空気が残留する恐れは非常に小さくなる。

【0025】(3) 上記態様により得られる有機薄膜層の例

図5は本発明の方法により得られる有機薄膜素子の有機薄膜層の別の例を示す。この有機薄膜層150は、基板支持体151上の透明導電層152の上面に、ホール輸送性有機薄膜層153、発光性有機薄膜層154及び電子輸送性有機薄膜層155が形成されたものである。この有機薄膜層150は、上記と同様にして各種の有機薄膜層153～155を剥離転写法により順次形成することにより得られる。

【0026】具体的には、まず仮支持体の片面にホール輸送性有機化合物の薄膜を形成して第一の転写材料とし、それを図1に示すようにマスク枠103の上をそれに接するようにして移動させる。第一の転写材料とマスク枠103及び透明導電層102とに挟まれた閉空間を減圧状態にすることにより、第一の転写材料を透明導電層102に密着させる。この状態で、第一の転写材料のホール輸送性有機化合物薄膜を加熱して、仮支持体を引き剥がし、さらにマスク枠103を取り外すと、透明導電層102上にホール輸送性有機薄膜層が連続面状に転写される。次に別の仮支持体の片面に発光性有機化合物の薄膜を形成して第二の転写材料とし、それをマスク枠103に接する状態でホール輸送性有機薄膜層上まで移動させる。第二の転写材料とマスク枠103及びホール輸送性有機薄膜層とに挟まれた閉空間を減圧状態にすることにより、第二の転写材料をホール輸送性有機薄膜層に密着させる。この状態で、第二の転写材料の発光性有機化合物薄膜を加熱して、仮支持体を引き剥がし、さらにマスク枠103を取り外すと、透明導電層102上のホール輸送性有機薄膜層上に発光性有機薄膜層が連続面状に転写される。同様に仮

支持体の片面に電子輸送性有機化合物の薄膜を形成してなる第三の転写材料を使用して、発光性有機薄膜層上に電子輸送性有機薄膜層を転写する。

【0027】(4) 第三の態様

図6は本発明の第三の態様による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示す。この方法では、微細パターン状の有機薄膜を基板上に形成することができる。まずガラス板からなる基板支持体201上に透明導電層202が設置された基板に、微細パターン状の開口部を有するマスク（単に「微細マスク」という）203を密着させる。図6(a)に示すように、微細マスク203の各開口部203aは、基板側の方が小さくなるようにテーパしている。すなわち、各開口部203aはテーパ部203bを有する。また全ての開口部203aはマスク203の裏面に形成された減圧孔204を通じて、外部の真空装置に連通している。

【0028】前記態様と同様に、転写材料110を微細マスク203の上面に接触させることにより、透明導電層202と、転写材料110と、微細マスク203とにより包囲された閉空間105を形成する〔図7(a)〕。閉空間105を減圧孔204を介して真空装置により減圧にすることにより、転写材料110は微細マスク203のテーパ形状に追随して変形し、開口部203aに面する領域のみ透明導電層202に密着する〔図7(b)〕。両者の密着面を加熱した後、転写材料110の仮支持体111を剥離することにより、透明導電層202上にマスク開口部203aに対応した微細パターン状の有機薄膜層210が転写される（図8）。

【0029】(5) 第三の態様により得られる有機薄膜層の例

図9は、第三の態様により得られる多色有機薄膜層の例を示す。この例の有機薄膜層310には、青色の発光性有機化合物部分311、緑色の発光性有機化合物部分312及び赤色の発光性有機化合物部分313からなる発光単位領域310aが全面に均一に形成されている。

【0030】図9の有機薄膜層310も第三の態様による方法により形成することができる。まず図8に示すように、第一の色（例えば青）の発光性有機化合物部分311を形成した後、図10に示すように微細マスク203の開口部203aが未転写領域210aの半分に位置するように、微細マスク203を位置決めする。図7と同様にして、仮支持体111に緑色の発光性有機化合物薄膜を形成した転写材料110を微細マスク203上に位置決めし、減圧及び加熱、さらに仮支持体111の剥離を行なうことにより緑色の発光性有機化合物薄膜を未転写領域210aの半分の領域に転写する。このようにして緑色の発光性有機化合物部分312を形成する。同様に、微細マスク203の開口部203aが未転写領域210aの残り半分の領域に位置するように、微細マスク203を位置決めし、仮支持体111に赤色の発光性有機化合物薄膜を形成した転写材料110を微細マスク203上に位置決めし、減圧及び加熱、さらに仮支持

体111の剥離を行なうことにより赤色の発光性有機化合物薄膜を転写する。このようにして赤色の発光性有機化合物部分313を形成する。

【0031】(6) 第三の態様により得られる有機薄膜層の別の例

図11は、有機薄膜層400がホール輸送性有機薄膜層410、発光性有機薄膜層420及び電子輸送性有機薄膜層430からなる例を示す。発光性有機薄膜層420は、青色の発光性有機化合物部分421、緑色の発光性有機化合物部分422及び赤色の発光性有機化合物部分423からなる発光単位領域420aが全面に均一に形成された構造を有する。

【0032】図5に示すのと同じ方法で透明導電層402上にホール輸送性有機薄膜層410を転写した後、図8～9に示したのと同じ方法でホール輸送性有機薄膜層410上に多色の発光性有機薄膜層420を転写する。最後に図5と同じ方法で発光性有機薄膜層420上に電子輸送性有機薄膜層430を転写する。

【0033】(7) 転写材料

(a) 仮支持体

本発明に使用する仮支持体は、化学的及び熱的に安定であって、可撓性を有する材料により構成されるべきであり、具体的にはフッ素樹脂〔例えば4フッ化エチレン樹脂（PTFE）、3フッ化塩化エチレン樹脂（PCTFE）〕、ポリエステル（例えばポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート（PEN））、ポリアリレート、ポリカーボネート、ポリオレフィン（例えばポリエチレン、ポリプロピレン）、ポリエーテルスルホン（PES）等の薄いシート、又はこれらの積層体が好ましい。仮支持体の厚さは1 μ m～300 μ mが適当であり、特に微細パターン状の有機薄膜層を形成する場合、3 μ m～20 μ mであるのが好ましい。

【0034】(b) 仮支持体への有機薄膜層の形成
バインダーとして高分子化合物を含む有機薄膜層は、湿式法により仮支持体に形成するのが好ましい。これには、有機薄膜層用材料を有機溶剤に所望の濃度に溶解し、得られた溶液を仮支持体に塗布する。塗布法としては、有機薄膜層の乾燥膜厚が200 nm以下で均一な膜厚分布が得られれば特に制限はなく、スピンコート法、グラビアコート法、ディップコート法、キャスト法、ダイコート法、ロールコート法、バーコート法、エクストロージェンコート法、インクジェット塗布法等が挙げられる。中でも、ロールツーロールによる生産性の高いエクストロージェンコート法が好ましい。

【0035】(8) 積層法

基板上に2層以上の有機薄膜を積層する場合、仮支持体に2層以上の有機薄膜層を積層した後、基板に剥離転写することにより一回で多層膜を積層することができるが、仮支持体上に第一の有機薄膜層を剥離転写法により形成した後、別の有機薄膜層を剥離転写法により順次形成しても良い。特に隣接する2層の溶剤溶解性が類似し

ている場合、順次形成する方法の方が良い。

【0036】(9) 剥離転写法

本発明の方法は有機薄膜層の形成を剥離転写法により行なうことを特徴とする。剥離転写法は、加熱により有機薄膜層を軟化させて、下地の透明導電層又は他の有機薄膜層に接着させた後、仮支持体を剥離することにより有機薄膜層だけを残留させる、すなわち転写する方法である。加熱手段としては、ラミネータ、赤外線ヒータ、レーザー、熱ヘッド等を利用することができる。熱ヘッドとしては、例えばファーストラミネータVA-400III（大成ラミネーター（株）製）や熱転写プリント用の熱ヘッド等を用いることができる。転写用の温度は特に限定的でなく、有機薄膜層の材質において変更することができるが、一般に40〜200℃が好ましく、特に60〜150℃が好ましい。

【0037】(10) 微細パターン状有機薄膜層の形成

微細パターン状有機薄膜層の形成には、微細パターン状の開口部を有するマスク（微細マスク）を使用する。マスクの材質は限定的でないが、金属、ガラス、セラミック、耐熱性樹脂等の耐久性があって安価なものが好ましい。またこれらの材料を組み合わせて使用することもできる。また機械的強度及び有機薄膜層の転写精度の観点から、マスクの厚さは2〜100μmであるのが好ましく、5〜60μmがより好ましい。

【0038】転写材料の有機薄膜層が正確にマスクの開口部の形状通りに下地の透明導電層又は他の有機薄膜層に接着するように、マスク開口部は基板側より転写材料側の方が大きくなるようにテーパしているのが好ましい。テーパの形状は図6に示すものに限定されない。

【0039】(11) 基板

図1に示すように、基板は基板支持体101とその上に形成された透明導電層102とからなる。基板支持体101及び透明導電層102の詳細は後述する。

【0040】(2) 有機薄膜素子の構成

有機薄膜素子の全体構成は、基板支持体上に透明導電層／発光性有機薄膜層／背面電極、透明導電層／発光性有機薄膜層／電子輸送性有機薄膜層／背面電極、透明導電層／ホール輸送性有機薄膜層／発光性有機薄膜層／電子輸送性有機薄膜層／背面電極、透明導電層／ホール輸送性有機薄膜層／発光性有機薄膜層／背面電極、透明導電層／発光性有機薄膜層／電子輸送性有機薄膜層／電子注入層／背面電極、透明導電層／ホール注入層／ホール輸送性有機薄膜層／発光性有機薄膜層／電子輸送性有機薄膜層／電子注入層／背面電極等をこの順に積層した構成、これらを逆に積層した構成等であってよい。発光性有機薄膜層は発光性化合物を含有し、通常、透明導電層から発光が取り出される。各層に用いる化合物の具体例については、例えば「月刊ディスプレイ」1998年10月号別冊の「有機ELディスプレイ」（テクノタイムズ社）等に記載されている。

【0041】(1) 基板

(a) 基板支持体

基板支持体は、ジルコニア安定化イットリウム（YSZ）、ガラス等の無機材料、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステルやポリスチレン、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、アリルジグリコールカーボネート、ポリイミド、ポリシクロオレフィン、ノルボルネン樹脂、ポリ（クロロトリフルオロエチレン）、テフロン（登録商標）、ポリテトラフルオロエチレンーポリエチレン共重合体等の高分子材料等からなるものであってよい。基板支持体は単一材料で形成しても、2種以上の材料で形成してもよい。中でも、フレキシブルな有機薄膜素子を形成するためには高分子材料が好ましく、耐熱性、寸法安定性、耐溶剤性、電気絶縁性及び加工性に優れ、且つ低通気性及び低吸湿性であるポリエステル、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホンや、ポリ（クロロトリフルオロエチレン）、テフロン、ポリテトラフルオロエチレンーポリエチレン共重合体等のフッ素原子を含む高分子材料がより好ましい。

【0042】基板支持体の形状、構造、大きさ等は有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。形状は板状とするのが一般的である。構造は単層構造であっても積層構造であってもよい。基板支持体は単一の部材で形成しても、2以上の部材で形成してもよい。また、基板支持体は無色透明であっても有色透明であってもよいが、発光性有機薄膜層から発せられる光を散乱又は減衰させることがない点で無色透明であるのが好ましい。

【0043】基板支持体の電極側の面、電極と反対側の面又はその両方に透湿防止層（ガスバリア層）を設けてもよい。透湿防止層を構成する材料としては窒化ケイ素、酸化ケイ素等の無機物を用いるのが好ましい。透湿防止層は高周波スパッタリング法等により成膜できる。また、基板支持体には必要に応じてハードコート層やアンダーコート層を設けてもよい。

【0044】(b) 透明導電層（透明電極）

透明導電層は有機化合物層にホール（正孔）を供給する陽極としての機能を有するが、陰極として機能させることもできる。以下、透明導電層を陽極とする場合について説明する。

【0045】透明導電層の形状、構造、大きさ等は特に制限されず、有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。透明導電層を形成する材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物等を用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料を用いる。具体例としては、アンチモンをドーパした酸化スズ（ATO）、フッ素をドーパした酸化スズ（FTO）、半導性金属酸化物（酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（IT

0)、酸化亜鉛インジウム (IZO) 等)、金属 (金、銀、クロム、ニッケル等)、これら金属と導電性金属酸化物との混合物又は積層物、無機導電性物質 (ヨウ化銅、硫化銅等)、有機導電性材料 (ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール等) 及びこれとITOとの積層物等が挙げられる。

【0046】透明導電層は印刷法、コーティング法等の湿式方法、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方法、CVD、プラズマCVD法等の化学的方法等によって基板支持体上に形成することができる。形成方法は透明導電層材料との適性を考慮して適宜選択すればよい。例えば、透明導電層の材料としてITOを用いる場合には、直流又は高周波スパッタ法、真空蒸着法、イオンプレーティング法等を用いればよい。また透明導電層の材料として有機導電性材料を用いる場合には、湿式製膜法を用いてよい。

【0047】透明導電層のパターニングはフォトリソグラフィ等による化学的エッチング、レーザ等を用いた物理的エッチング等により行うことができる。またマスクを用いた真空蒸着やスパッタリング、リフトオフ法、印刷法等によりパターニングしてもよい。

【0048】透明導電層の形成位置は有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択してよいが、基板支持体上に形成するのが好ましい。このとき透明導電層は基板支持体の表面全体に形成しても一部のみに形成してもよい。

【0049】透明導電層の厚さはその材料に応じて適宜選択すればよいが、通常10nm～50μmであり、好ましくは50nm～20μmである。透明導電層の抵抗値は $10^3 \Omega/\square$ 以下とするのが好ましく、 $10^2 \Omega/\square$ 以下とするのがより好ましい。透明導電層は無色透明であっても有色透明であってもよい。透明導電層側から発光を取り出すためには、その透過率は60%以上とするのが好ましく、70%以上とするのがより好ましい。透過率は分光光度計を用いた公知の方法に従って測定することができる。

【0050】また、「透明導電膜の新展開」(沢田豊監修、シーエムシー刊、1999年)等に詳細に記載されている電極も本発明に適用できる。特に耐熱性の低いプラスチック基板支持体を用いる場合は、透明導電層材料としてITO又はIZOを使用し、150℃以下の低温で製膜するのが好ましい。

【0051】(2) 背面電極

背面電極は有機化合物層に電子を注入する陰極としての機能を有するが、陽極として機能させることもできる。以下、背面電極を陰極とする場合について説明する。

【0052】背面電極の形状、構造、大きさ等は特に制限されず、有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。背面電極を形成する材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物等を用いることができ、好ましくは仕事関数

が4.5eV以下の材料を用いる。具体例としては、アルカリ金属 (Li、Na、K、Cs等)、アルカリ土類金属 (Mg、Ca等)、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金、リチウム-アルミニウム合金、マグネシウム-銀合金、インジウム、希土類金属 (イッテルビウム等) 等が挙げられる。これらは単独で使用してもよいが、安定性と電子注入性とを両立させるためには2種以上を併用するのが好ましい。これら材料の中で、電子注入性の観点からはアルカリ金属及びアルカリ土類金属が好ましく、保存安定性の観点からはアルミニウムを主体とする材料が好ましい。ここでアルミニウムを主体とする材料とは、アルミニウム単独、アルミニウムと0.01～10質量%のアルカリ金属又はアルカリ土類金属との合金又は混合物 (リチウム-アルミニウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金等) を指す。背面電極の材料としては、特開平2-15595号、特開平5-121172号等に詳述されているものも使用できる。

【0053】背面電極は印刷法、コーティング法等の湿式方法、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方法、CVD、プラズマCVD法等の化学的方法等によって形成することができる。形成方法は背面電極材料との適性を考慮して適宜選択すればよい。例えば、背面電極の材料として2種以上の金属等を用いる場合には、その材料を同時又は順次にスパッタして形成できる。

【0054】背面電極のパターニングはフォトリソグラフィ等による化学的エッチング、レーザ等を用いた物理的エッチング等により行うことができる。また、マスクを用いた真空蒸着やスパッタリング、リフトオフ法、印刷法等によりパターニングしてもよい。

【0055】背面電極の形成位置は有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択してよいが、有機化合物層上に形成するのが好ましい。このとき背面電極は有機化合物層の表面全体に形成しても一部のみに形成してもよい。また、背面電極と有機化合物層との間にアルカリ金属又はアルカリ土類金属のフッ化物等からなる誘電体層を0.1～5nmの厚さで設置してもよい。誘電体層は真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等により形成することができる。

【0056】背面電極の厚さはその材料に応じて適宜選択すればよいが、通常10nm～5μmであり、好ましくは50nm～1μmである。背面電極は透明であっても不透明であってもよい。透明背面電極は、上述した材料の層を1～10nmの厚さに薄く製膜し、更にITOやIZO等の透明導電性材料を積層して形成してよい。

【0057】(3) 発光性有機薄膜層

発光性有機薄膜層は少なくとも一種の発光性化合物を含有する。発光性化合物は特に限定的ではなく、蛍光発光性化合物であっても燐光発光性化合物であってもよい。また蛍光発光性化合物及び燐光発光性化合物を同時に用

いてもよい。本発明においては、発光輝度及び発光効率の点から燐光発光性化合物を用いることが好ましい。

【0058】蛍光発光性化合物としては、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタリイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、金属錯体（8-キノリノール誘導体の金属錯体、希土類錯体等）、高分子発光性化合物（ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等）等が使用できる。これらは単独で用いても二種以上を混合して用いてもよい。

【0059】燐光発光性化合物は、好ましくは三重項励起子から発光することができる化合物であり、オルトメタル化錯体及びボルフィリン錯体が好ましい。ボルフィリン錯体の中ではボルフィリン白金錯体が好ましい。燐光発光性化合物は単独で使用しても2種以上を併用してもよい。

【0060】本発明でいうオルトメタル化錯体とは、山本明夫著「有機金属化学 基礎と応用」、150頁及び232頁、裳華房社（1982年）、H. Yersin著「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」、71～77頁及び135～146頁、Springer-Verlag社（1987年）等に記載されている化合物群の総称である。オルトメタル化錯体を形成する配位子は特に限定されないが、2-フェニルピリジン誘導体、7,8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体又は2-フェニルキノリン誘導体であるのが好ましい。これら誘導体は置換基を有してもよい。また、これらのオルトメタル化錯体形成に必須の配位子以外に他の配位子を有していてもよい。オルトメタル化錯体を形成する中心金属としては、遷移金属であればいずれも使用可能であり、本発明ではロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウム等を好ましく用いることができる。このようなオルトメタル化錯体を含む有機化合物層は、発光輝度及び発光効率に優れている。オルトメタル化錯体については、特願2000-254171号の段落番号0152～0180にもその具体例が記載されている。

【0061】本発明で用いるオルトメタル化錯体は、Inorg. Chem., 30, 1685, 1991, Inorg. Chem., 27, 3464, 1988, Inorg. Chem., 33, 545, 1994, Inorg. Chim. Acta, 181, 245, 1991, J. Organomet. Chem., 335, 293, 1987, J. Am. Chem. Soc., 107, 1431, 1985 等に記載の公知の手法で合成することができる。

【0062】発光性有機薄膜層中の発光性化合物の含有量は特に制限されないが、例えば0.1～70質量%であり、1～20質量%であるのが好ましい。発光性化合物の含有量が0.1質量%未満であるか、又は70質量%を超えると、その効果が十分に発揮されない場合がある。

【0063】発光性有機薄膜層は必要に応じてホスト化合物、ホール輸送材料、電子輸送材料、電気的に不活性なポリマーバインダー等を含有してもよい。

【0064】ホスト化合物とはその励起状態から発光性化合物へエネルギー移動が起こり、その結果該発光性化合物を発光させる化合物である。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーラルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーラルアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン化合物、ボルフィリン化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノリン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体、メタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾール等を配位子とする金属錯体、ポリシラン化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられる。ホスト化合物は1種単独で使用しても2種以上を併用してもよい。

【0065】ホール輸送材料は陽極からホールを注入する機能、ホールを輸送する機能、及び陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば特に限定されず、低分子材料であっても高分子材料であってもよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーラルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン化合物、ボルフィリン化合物、ポリシラン化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフ

フェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられる。これらは単独で使用しても2種以上を混合して使用してもよい。

【0066】電子輸送材料は陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、及び陽極から注入されたホールを障壁する機能のいずれかを有しているものであれば特に限定されず、例えばトリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノロン誘導体、チオピランジオキソド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体、メタロフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾール等を配位子とする金属錯体、アニリン共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が使用可能である。

【0067】ポリマーバインダーとしては、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキソド、ポリブタジエン、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ポリビニルブチラール、ポリビニルアセタール等が使用可能である。ポリマーバインダーを含有する発光性有機薄膜層は、湿式製膜法によって、容易に且つ大面積に塗布形成することができる。

【0068】発光性有機薄膜層の厚さは10~200nmとするのが好ましく、20~80nmとするのがより好ましい。厚さが200nmを超えると駆動電圧が上昇する場合があります、10nm未満であると有機薄膜素子が短絡する場合がある。

【0069】(4) ホール輸送性有機薄膜層
有機薄膜素子は、必要に応じて上述したホール輸送材料からなるホール輸送性有機薄膜層を有してよい。ホール輸送性有機薄膜層は上述のポリマーバインダーを含有してもよい。ホール輸送性有機薄膜層の厚さは10~200nmとするのが好ましく、20~80nmとするのがより好ましい。厚さが200nmを超えると駆動電圧が上昇する場合があります、10nm未満であると有機薄膜素子が短絡する場合がある。

【0070】(5) 電子輸送性有機薄膜層
有機薄膜素子は、必要に応じて上述した電子輸送材料からなる電子輸送性有機薄膜層を有してよい。電子輸送性有機薄膜層は上述のポリマーバインダーを含有してもよい。電子輸送性有機薄膜層の厚さは10~200nmとするのが

好ましく、20~80nmとするのがより好ましい。厚さが200nmを超えると駆動電圧が上昇する場合があります、10nm未満であると有機薄膜素子が短絡する場合がある。

【0071】(6) その他の層

有機薄膜素子は、特開平7-85974号、同7-192866号、同8-22891号、同10-275682号、同10-106746号等に記載の保護層を有していてもよい。保護層は有機薄膜素子の最上面に形成する。ここで最上面とは、基板支持体、透明導電層、有機化合物層及び背面電極をこの順に積層する場合には背面電極の外側表面を指し、基板支持体、背面電極、有機化合物層及び透明導電層をこの順に積層する場合には透明導電層の外側表面を指す。保護層の形状、大きさ、厚さ等は特に限定されない。保護層をなす材料は、水分や酸素等の有機薄膜素子を劣化させ得るものが素子内に侵入又は透過するのを抑制する機能を有しているものであれば特に限定されず、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、酸化ゲルマニウム、二酸化ゲルマニウム等が使用できる。

【0072】保護層の形成方法は特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子センエピタキシ法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザCVD法、熱CVD法、コーティング法等が適用できる。

【0073】また有機薄膜素子には水分や酸素の侵入を防止するための封止層を設けるのが好ましい。封止層を形成する材料としては、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーとの共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウリア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン又はジクロロジフルオロエチレンと他のモノマーとの共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質、金属(In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等)、金属酸化物(HgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等)、金属フッ化物(MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等)、液状フッ素化炭素(パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等)、該液状フッ素化炭素に水分や酸素の吸着剤を分散させたもの等が使用可能である。

【0074】本発明においては、外部からの水分や酸素を遮断する目的で、有機化合物層を封止板、封止容器等の封止部材により封止する。本発明では、封止部材を背面電極側のみに設置しても、発光積層体全体を封止部材で覆ってもよい。有機化合物層を封止でき外部の空気を遮断することができれば、封止部材の形状、大きさ、厚さ等は特に限定されない。封止部材に用いる材料としては、ガラス、ステンレス、金属(アルミ等)、プラスチ

ック（ポリ(クロロトリフルオロエチレン)、ポリエステル、ポリカーボネート等）、セラミック等が使用できる。

【0075】封止部材を発光積層体に設置する際には、適宜封止剤（接着剤）を用いてよい。発光積層体全体を封止部材で覆う場合は、封止剤を用いずに封止部材同士を熱融着してもよい。封止剤としては紫外線硬化樹脂、熱硬化樹脂、二液型硬化樹脂等が使用可能である。

【0076】さらに本発明においては、封止容器と有機薄膜素子の間の空間に水分吸収剤又は不活性液体を挿入してもよい。水分吸収剤は特に限定されず、具体例としては酸化バリウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、五酸化リン、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化銅、フッ化セシウム、フッ化ニオブ、臭化カルシウム、臭化バナジウム、モレキュラーシーブ、ゼオライト、酸化マグネシウム等が挙げられる。不活性液体としてはパラフィン類、流動パラフィン類、フッ素系溶剤（パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等）、塩素系溶剤、シリコンオイル類等が使用可能である。

【0077】

【実施例】本発明を以下の実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。

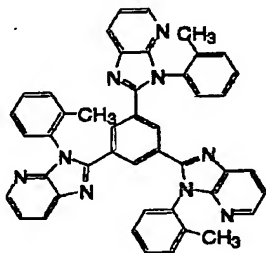
【0078】製造例1

ポリビニルカルバゾール（ $M_w=63000$ 、アルドリッチ社製）とオルトメタル化錯体としてのトリス（2-フェニルピリジン）イリジウム錯体とを40：1の重量比でジクロロエタンに溶解して得た塗布液を、厚さ5 μm のPETフィルム（帝人（株）製）からなる仮支持体にバーコートを用いて塗布し、室温で乾燥させることにより、厚さ40nmの発光層を仮支持体に形成した第一の転写材料を作製した。

【0079】製造例2

ポリビニルブチラール（ $M_w=50000$ 、アルドリッチ社製）と下記一般式：

【化1】



により表される化合物とを10：20の重量比で、1-ブタノールに溶解して得た塗布液を、厚さ5 μm のPETフィルム（帝人（株）製）からなる仮支持体にエクストルージョン型塗布機を用いて塗布し、80℃で2時間真空乾燥さ

せることにより、厚さ60nmのキャリア輸送層（電子輸送性有機薄膜層）を仮支持体に形成した第二の転写材料を作製した。

【0080】実施例1

有機EL素子の作製

基板支持体として厚さ0.5mmで2.5cm角のガラス板を用い、この基板支持体を真空チャンバー内に導入し、 SnO_2 含有率が10質量%のITOターゲット（インジウム：錫=95：5（モル比））を用いて、DCマグネトロンスパッタ（条件：基板支持体の温度250℃、酸素圧 1×10^{-3} Pa）により、ITO薄膜（厚さ0.2 μm ）からなる透明電極を形成した。ITO薄膜の表面抵抗は $10\Omega/\square$ であった。

【0081】透明電極を形成したガラス板を洗浄容器に入れ、イソプロピルアルコール（IPA）により洗浄した後、これに酸素プラズマ処理を行った。処理した透明電極の表面に、ポリ（エチレンジオキシシチオフェン）・ポリスチレンスルホン酸の水性分散液（BAYER社製、Baytron P：固形分1.3質量%）をスピンコートした後、150℃で2時間真空乾燥し、厚さ100nmのキャリア輸送層（ホール輸送性有機薄膜層）を形成した。

【0082】得られたホール輸送性有機薄膜層を有する基板を図1に示す装置に設置し、ホール輸送性有機薄膜層の上面に製造例1で作製した第一の転写材料を接触させ、真空吸引により第一の転写材料と基板のホール輸送性有機薄膜層とを密着させた。第一の転写材料側から赤外線ランプで110℃に加熱し、仮支持体を引き剥がすことにより、ホール輸送性有機薄膜層の上面に形成された発光性有機薄膜層を得た。

【0083】このようにしてホール輸送性有機薄膜層及び発光性有機薄膜層が形成された基板を図1に示す装置に設置し、製造例2で作製した第二の転写材料を、真空吸引により発光性有機薄膜層と密着させた。第二の転写材料側から赤外線ランプで110℃に加熱し、仮支持体を引き剥がすことにより、発光性有機薄膜層上に電子輸送性有機薄膜層を積層した。

【0084】電子輸送性有機薄膜層上にパターンニングした蒸着用のマスク（発光面積が5mm×5mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀=10：1（モル比）を0.25 μm の厚さに蒸着し、銀を0.3 μm の厚さに蒸着して、背面電極を形成した。透明電極（陽極として機能する）及び背面電極よりそれぞれアルミニウムのリード線を結線し、積層構造体を形成した。

【0085】得られた積層構造体を、窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、ガラス製の封止容器で紫外線硬化型接着剤（長瀬チバ（株）製、XNR5493）を用いて封止し、有機EL素子を作製した。

【0086】得られた有機EL素子を以下の方法により評価した。まずソースメジャーユニット2400型（東洋テクニカ（株）製）を用いて、直流電圧を有機EL素子に印加

し、発光させた。200 Cd/m²時の発光効率は、1%、2000 Cd/m²時の発光効率は3%であった。

【0087】

【発明の効果】上記の通り、本発明により有機薄膜素子を構成する有機薄膜層を仮支持体に湿式法により塗布し、その有機薄膜層を基板に転写することにより、発光効率、発光量の均一性及び耐久性に優れた有機EL素子等の有機薄膜素子を低コストで製造できる。特に有機薄膜層を仮支持体に一旦塗布する方式を採用しているので、有機薄膜層を非常に薄膜化できるという利点もある。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の一実施例による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示し、(a)は概略断面図であり、(b)はマスク枠及び透明導電層を示す平面図である。

【図2】 図1に示す方法において、基板と転写材料との間の閉空間を減圧した状態を示す概略断面図である。

【図3】 本発明の方法により得られる有機薄膜素子の一例を示す概略断面図である。

【図4】 本発明の別の実施例による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示す概略断面図である。

【図5】 本発明の方法により得られる有機薄膜素子の別の例を示す概略断面図である。

【図6】 本発明のさらに別の実施例による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示し、(a)は概略断面図であり、(b)は微細マスクを示す平面図である。

【図7】 図6の製造装置を用いて透明導電層に転写材料の有機薄膜層を転写する様子を示し、(a)は微細マスク上に転写材料を配置させた状態を示す概略断面図であり、(b)は微細マスクと転写材料との間の閉空間を減圧して、転写材料を微細マスクの開口部に密着させた状態を示す概略断面図である。

【図8】 図6及び図7に示す方法により得られる有機

薄膜層の一例を示す概略断面図である。

【図9】 本発明の方法により得られる有機薄膜素子のさらに別の例を示す概略断面図である。

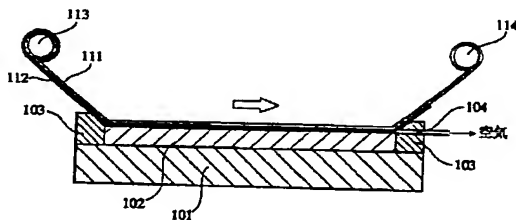
【図10】 図8に示す有機薄膜層上にさらに微細マスクを用いて別の有機薄膜層を形成する様子を示す概略断面図である。

【図11】 本発明の方法により得られる有機薄膜素子のさらに別の例を示す概略断面図である。

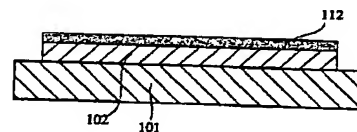
【符号の説明】

- 101, 151, 201, 301, 401・・・基板支持体
- 102, 152, 202, 302, 402・・・透明導電層
- 103・・・マスク枠
- 104, 204・・・減圧孔
- 105, 106・・・閉空間
- 110,・・・転写材料
- 111,・・・仮支持体
- 112, 150, 210, 310, 400・・・有機薄膜層
- 113・・・転写材料巻回用ロール
- 114・・・仮支持体巻回用ロール
- 115・・・パイプ
- 120・・・遮蔽板
- 153, 410・・・ホール輸送性有機薄膜層
- 154, 420・・・発光性有機薄膜層
- 155, 430・・・電子輸送性有機薄膜層
- 203・・・微細マスク
- 203a・・・微細マスクの開口部
- 203b・・・開口部のテーパ部
- 210a・・・未転写領域
- 310a, 420a・・・発光単位領域
- 311, 421・・・青色の発光性有機薄膜層
- 312, 422・・・緑色の発光性有機薄膜層
- 313, 423・・・赤色の発光性有機薄膜層

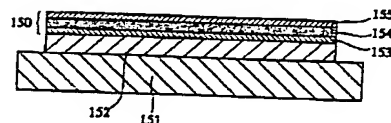
【図2】



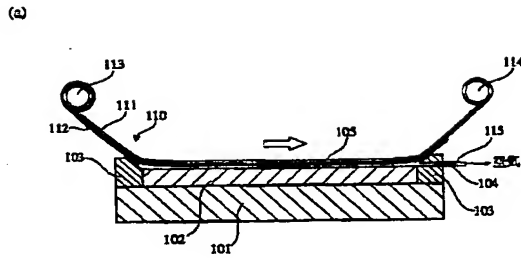
【図3】



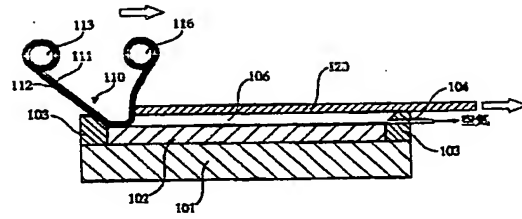
【図5】



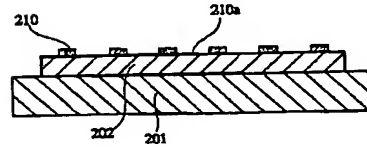
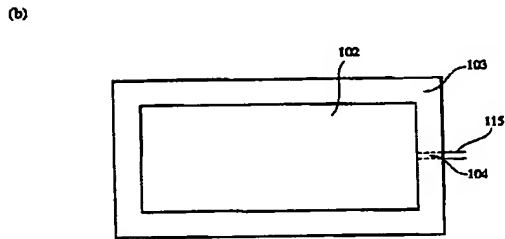
【圖 1】



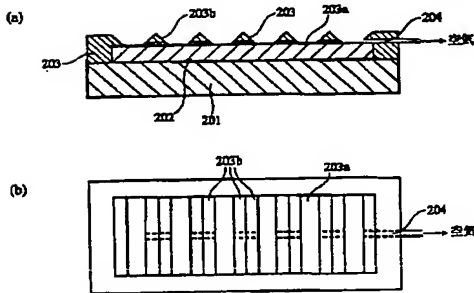
【圖 4】



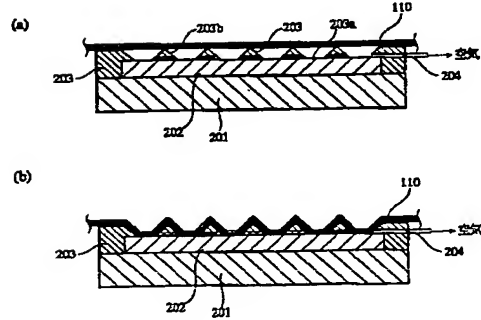
【圖 8】



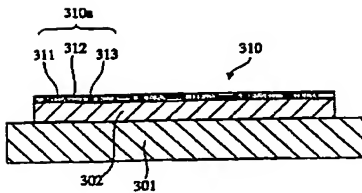
【圖 6】



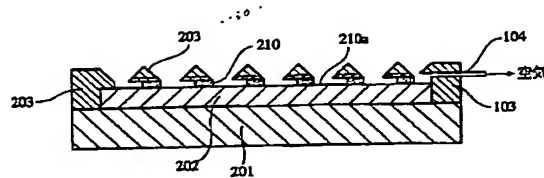
【圖 7】



【圖 9】



【圖 10】



【図11】

